

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 06-132107

(43)Date of publication of application : 13.05.1994

(51)Int.Cl.

H01F 1/08
C22C 38/00
H01F 1/053
// H01F 7/02

(21)Application number : 04-303254

(71)Applicant : CITIZEN WATCH CO LTD

(22)Date of filing : 16.10.1992

(72)Inventor : SATOU JIYUNJI
SAKAKIBARA YASUSUKE
HASHIMOTO HIDETAKE

(54) COMPOSITE RARE EARTH BOND MAGNET.

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain the maximum energy product which is higher than that in the case of the production only with sole powder by compressing and molding composite magnetic powder and a binder within the magnetic field.

CONSTITUTION: A composite magnetic powder is obtained by uniformly mixing an anisotropic SmFeN system magnetic powder where Sm is 30wt.%, Fe is 65 to 80wt.% and N is 1 to 6wt.% and a grain size is 10 μ m or less to an anisotropic NdFeB system magnet powder where R (rare earth element) of 20 to 45wt.%, Fe of 50 to 75wt.% and B of 0.5 to 5wt.% are used as the main elements, the main phase is formed of Nd₂Fe₁₄B and a grain size is 50 to 500 μ m. This composite magnetic powder is compressed and molded together with a binder in the magnetic field. Moreover, it is also possible to use composite magnetic powder obtained by mixing anisotropic NdFeB system magnetic powder of 50 to 500 μ m and anisotropic Sm₂Co₁₇ system magnetic powder of 10 μ m or less and composite magnetic powder obtained by mixing anisotropic Sm₂Co₁₇ system magnetic powder of 50 to 500 μ m and SmFeN system magnetic powder of 10 μ m or less. Thereby, the filling density can be raised and a magnet having higher characteristic can be obtained.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁(JP)

(12)公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-132107

(43)公開日 平成6年(1994)5月13日

(51)Int.Cl. ⁵	識別記号	庁内整理番号	FI	技術表示箇所
H 0 1 F 1/08		A		
C 2 2 C 38/00	3 0 3	D		
H 0 1 F 1/053				
// H 0 1 F 7/02		A		
			H 0 1 F 1/04	H
審査請求 未請求 請求項の数3(全 7 頁)				

(21)出願番号 特願平4-303254

(22)出願日 平成4年(1992)10月16日

(71)出願人 000001960

シチズン時計株式会社

東京都新宿区西新宿2丁目1番1号

(72)発明者 佐藤 博司

埼玉県所沢市大字下富字武野840番地 シ
チズン時計株式会社技術研究所内

(72)発明者 榊原 庸介

埼玉県所沢市大字下富字武野840番地 シ
チズン時計株式会社技術研究所内

(72)発明者 橋本 英豪

埼玉県所沢市大字下富字武野840番地 シ
チズン時計株式会社技術研究所内

(54)【発明の名称】 複合希土類ボンド磁石

(57)【要約】

【目的】 NdFeB系の異方性ボンド磁石では、磁石合金の粉碎により磁気特性が劣化するため比較的粗な粉体を用いている。また、SmFeN系異方性ボンド磁石では単軸粒子に依存する保磁力機構のために、数 μ mの微粉が用いられている。これらの粗粉末あるいは微粉末の単独では圧縮成形性が悪いので充填密度が上がらず、ボンド磁石としての磁気特性は十分でない。本発明の目的はこれらの磁石粉末の圧縮成形性を改良して高い磁気特性を示すボンド磁石を提供することである。

【構成】 NdFeB系の50～500 μ mの磁石粉にSmFeN系の10 μ m以下の磁石粉を均一混合し、コンパウンド後圧縮成形することにより単独では得られなかった充填密度を実現した。また、同様な効果がNdFeBとSm₂Co₁₇の混合系、Sm₂Co₁₇とSmFeNの混合系でも得られた。

【効果】 焼結磁石に匹敵する高い磁気特性を示すボンド磁石が得られる。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 R (Rは希土類元素) 20~45重量%、Fe 50~75重量%およびB 0.5~5重量%を主成分とし、主相がNd₂Fe₁₄Bからなり、粒度が50~500μmの異方性磁石粉と、Sm 30重量%、Fe 65~80重量%およびN 1~6重量%を主成分とし、粒度が10μm以下の異方性SmFeN系磁石粉とを均一混合して得られる複合磁石粉をバインダーとともに磁場中圧縮成形して得られることを特徴とする複合希土類ボンド磁石。

【請求項2】 R (Rは希土類元素) 20~45重量%、Fe 50~75重量%およびB 0.5~5重量%を主成分とし、主相がNd₂Fe₁₄Bからなり、粒度が50~500μmの異方性磁石粉と、R (Rは希土類元素) 24~28重量%、Co 22~73.5重量%、Fe 1~35重量%およびM (MはZr、Nb、Ta、Ti、Hf、Vのうち少なくとも1種) を含有し、粒度が100μm以下の異方性Sm₂Co₁₇系磁石粉とを均一混合して得られる複合磁石粉をバインダーとともに磁場中圧縮成形して得られることを特徴とする複合希土類ボンド磁石。

【請求項3】 R (Rは希土類元素) 24~28重量%、Co 22~73.5重量%、Fe 1~35重量%およびM (MはZr、Nb、Ta、Ti、Hf、Vのうち少なくとも1種) を含有し、粒度が50~500μmの異方性Sm₂Co₁₇系磁石粉と、Sm 30重量%、Fe 65~80重量%およびN 1~6重量%を主成分とし、粒度が10μm以下の異方性SmFeN系磁石粉とを均一混合して得られる複合磁石粉をバインダーとともに磁場中圧縮成形することを特徴とする複合希土類ボンド磁石。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、異方性希土類ボンド磁石に関するものである。近年、OA、AV機器の小型化がめざましく、それらに使用される駆動用モーターも小型で高性能なものが要求されており、すなわち高性能な小型磁石が求められており、このような分野で利用されるものである。したがって、従来焼結磁石で用いられていた領域でも利用可能となるものである。

【0002】

【従来の技術】 異方性希土類ボンド磁石は、Sm₂Co₁₇系、NdFeB系、SmFeN系が存在しているが、実用化されているのはSm₂Co₁₇系のみである。ところが、本来のポテンシャルが比較的低いために、ボンド磁石として使用される分野は限定されている。Sm₂Co₁₇系圧縮ボンド磁石の最大エネルギー積は最高で17MGOeである。

【0003】 また、NdFeB系は焼結体を粉砕すると保磁力が極端に低下し、磁石としての特性が損なわれる

ためいまだ実用化されるには至っていない。ここでHDR (Hydrogen Desorption Decomposition Recombination) 法で製造されたボンド磁石粉においても、焼結磁石を粉砕したものに比較し保磁力の低下は少ないものの50μm以下の微粉の特性は低く、このような微粉は除かれて使用するのが実状である。この系で圧縮ボンド磁石の最大エネルギー積は20MGOe以下である。

【0004】 また、SmFeN系は単軸粒子の保磁力機構であり、約10μm以下の粉体を用いなければならず、また焼結では変態してしまうので使用できず、その最大エネルギー積は21MGOeの報告があるが、未だ開発途上にあり実用化はなされていない。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】 異方性NdFeB系のボンド磁石粉は一般的には比較的大きな粗粉体からなるために圧縮成形では充填密度が上がらず、本来のポテンシャルに基づいた特性が出ないので、さらに充点密度を上げることが課題である。

【0006】 また、SmFeN系磁石粉は、微粉体からなるためにこれもまた圧縮成形では充填密度が上がらない。

【0007】 このように、単独の材料で高特性を出そうとすると無理があった。また、いかに充填密度を上げるかが、高特性を得るための課題となっていた。そこで密度を上げるために静水圧プレスの手法があるがこれはすでに公知であり、また量産性に乏しく、工業的に応用することには無理があった。

【0008】

【課題を解決するための手段】 本発明では、上述した異方性NdFeB系磁石粉 (粗粉) に対しては異方性SmFeN系磁石粉 (微粉) または、異方性Sm₂Co₁₇系磁石粉 (微粉) を混合した複合粉、および異方性Sm₂Co₁₇系磁石粉 (粗粉) に対してはSmFeN系磁石粉 (微粉) を混合した複合粉とすることによりそれぞれ単独で製造した磁石より特性の高いものを得ることを特徴とするものである。なお、ここで用いるNdFeB系のボンド磁石粉は焼結磁石で最大エネルギー積が45MGOeのものを使用しボンド磁石としては、19MGOeを示すものである。また、Sm₂Co₁₇系磁石合金粉の特性としては、通常の粉体でボンド磁石として14MGOe、50~500μmの粉体で10MGOeのものを使用した。また、SmFeN系磁石粉はTh₂Zn₁₇構造を示すもので、ボンド磁石としては16MGOeの特性を示すものである。

【0009】

【作用】 このようにして得られた複合粉体で製造された磁石は、それぞれの単独粉で製造した場合より高特性が得られる。すなわち、

【表1】

試料NO.	SmFeNの 混合量(%) ^{5/10_{μm}}	充填率 wt%	密度 g/cm ³	Br KG	iHc KOe	(BH) _{max} MGDe
1	0	70.1	5.22	8.7	8.9	18.5
2	1	70.6	5.26	8.8	8.9	19.0
3	2	71.1	5.30	8.8	9.0	19.3
4	3	71.6	5.33	9.0	8.9	19.7
5	4	72.2	5.38	9.1	9.0	20.2
6	5	72.8	5.42	9.1	9.1	20.6
7	6	73.2	5.45	9.3	8.9	20.9
8	7	73.5	5.48	9.4	9.0	21.4
9	8	74.1	5.52	9.4	9.0	21.9
10	9	74.7	5.57	9.6	9.0	22.3
11	10	75.1	5.59	9.8	9.1	22.7
12	15	77.6	5.81	10.1	9.0	25.0
13	20	79.3	5.89	10.5	9.1	27.1
14	25	81.3	6.10	10.9	9.0	28.9
15	30	82.2	6.17	11.3	9.1	30.3
16	35	81.7	6.14	11.1	9.1	29.5
17	40	79.6	5.99	10.9	9.0	28.1
18	45	79.0	5.96	10.6	9.1	27.0
19	50	77.8	5.87	10.4	9.1	26.8
20	55	76.3	5.77	10.2	9.1	25.9
21	60	75.1	5.69	10.0	9.0	25.0
22	65	74.0	5.61	9.7	9.1	24.0
23	70	72.9	5.54	9.5	9.2	22.5
24	75	71.8	5.46	9.3	9.1	21.4
25	80	70.6	5.39	9.0	9.1	20.2
26	85	70.0	5.34	8.8	9.2	19.4
27	90	69.3	5.29	8.6	9.2	17.9
28	95	68.1	5.21	8.4	9.2	16.3
29	100	67.0	5.13	8.2	9.2	15.6

に示すようにNdFeB系磁石粉とSmFeN系磁石粉の混合粉の場合はNdFeBの50 μ m以上500 μ m以下の粗粉とSmFeNの10 μ m以下の微粉を混合するために最適の混合比の複合粉で充填密度を真密度の82%まで上げることが可能であり、最大エネルギー積で30MGDeが得られた。また、ここで限定した粒度より下位粒(50 μ m以下)、または上位粒(500 μ m以上)の粉体が5%以下含まれても問題はなく、實際上

は篩い分けしたとしても特に下位粒はこの程度存在するのが普通である。また、50~500 μ mの範囲で特定の大きさの粒度に限定しても特に大きな効果はなく、粒度分布にも依存しない。

【表1】

【0010】また、

【表2】

試料 N O .	$\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ の ≤ 100 混合量 (%)	充填率 wt%	密度 g/cm^3	Br KG	iHc KDe	(BH) _{max} MGDe
1	0	70.1	5.22	8.7	8.9	18.5
2	1	70.4	5.26	8.7	9.0	18.6
3	2	71.0	5.30	8.7	8.9	18.6
4	3	72.3	5.35	8.7	8.9	18.7
5	4	72.5	5.38	8.7	9.0	18.7
6	5	72.6	5.42	8.7	9.0	18.8
7	6	73.4	5.46	8.7	9.0	18.9
8	7	73.7	5.49	8.7	9.1	19.0
9	8	73.9	5.54	8.7	9.0	19.1
10	9	74.0	5.56	8.8	8.9	19.2
11	10	74.1	5.58	8.8	9.0	19.4
12	15	77.3	5.86	8.9	9.1	19.6
13	20	79.5	6.07	8.9	9.1	19.8
14	25	81.0	6.22	9.0	9.1	20.2
15	30	82.1	6.34	9.1	9.1	20.5
16	35	80.9	6.28	8.8	9.0	19.3
17	40	79.3	6.19	8.6	9.0	18.7
18	45	78.6	6.17	8.4	9.1	18.5
19	50	77.0	6.08	8.3	9.1	17.6
20	55	75.8	6.02	8.1	9.1	17.1
21	60	74.9	5.98	7.9	9.2	16.2
22	65	73.5	5.91	7.8	9.1	15.0
23	70	72.3	5.84	7.6	9.2	14.3
24	75	71.3	5.79	7.4	9.1	13.2
25	80	70.1	5.72	7.2	9.1	12.3
26	85	69.0	5.67	7.1	9.1	11.5
27	90	69.5	5.74	6.9	9.1	11.0
28	95	67.9	5.63	6.7	9.1	10.5
29	100	67.0	5.59	6.6	9.1	10.1

に示すようにNdFeB系磁石粉と $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 系磁石粉の混合粉の場合も同様にNdFeBの $50\mu\text{m}$ 以上 $500\mu\text{m}$ 以下の粗粉と $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 系磁石粉 $100\mu\text{m}$ 以下の微粉を混合するために最適の混合比の複合粉で充填密度を真密度の82%まで上げることが可能であ

り、最大エネルギー積で21MGDeが得られた。なお、 $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ の粉体を $100\mu\text{m}$ 以下に限定したのは、

【表3】

試料NO.	Sm ₂ Co ₁₇ の 粒 径	充填率 wt%	密 度 g/cm ³	Br KG	iHc KDe	(BH) _{max} MGOe
1	<10 μm	82.1	6.34	9.1	9.1	20.5
2	<50 μm	80.8	6.23	8.9	9.2	19.7
3	<100μm	77.5	6.15	8.7	9.1	19.0
4	<250μm	74.2	6.00	8.2	9.1	17.5
5	<500μm	73.2	5.90	7.8	9.1	15.0

に示すように100μmを超えると混合しても密度の上昇が期待できなく、特性が向上しなくなるためであり、好ましくは10μm以下の場合に混合した効果が最も高い。またNdFeBの場合、ここで限定した粒度より下位粒(50μm以下)、または上位粒(500μm以上)の粉体が5%以下は含まれても問題はなく、實際上

は篩い分けしたとしても特に下位粒はこの程度存在するのが普通である。

【表2】

【表3】

【0011】また、

【表4】

試料NO.	SmFeN ₂ の 混合量(%)	充填率 wt%	密度 g/cm ³	Br KG	iHc KOe	(BH) _{max} MGoe
1	0	71.3	5.95	8.2	9.3	15.2
2	1	71.5	5.97	8.2	9.2	15.3
3	2	71.7	5.98	8.2	9.3	15.4
4	3	72.0	6.00	8.3	9.3	15.5
5	4	72.2	6.01	8.3	9.2	15.6
6	5	72.3	6.01	8.3	9.3	15.6
7	6	72.6	6.03	8.4	9.2	15.8
8	7	72.9	6.05	8.4	9.3	15.9
9	8	73.2	6.07	8.4	9.3	16.0
10	9	73.4	6.08	8.4	9.2	16.1
11	10	73.5	6.09	8.5	9.3	16.2
12	15	75.0	6.18	8.6	9.3	16.8
13	20	77.1	6.33	8.9	9.3	17.8
14	25	79.0	6.46	9.1	9.3	18.7
15	30	80.9	6.59	9.3	9.3	19.6
16	35	81.3	6.59	9.3	9.3	19.8
17	40	78.0	6.30	9.0	9.2	18.2
18	45	77.0	6.19	8.9	9.3	17.7
19	50	75.1	6.01	8.6	9.2	16.9
20	55	73.9	5.89	8.5	9.2	16.3
21	60	73.5	5.83	8.5	9.2	16.2
22	65	72.8	5.75	8.4	9.2	15.8
23	70	72.1	5.67	8.3	9.2	15.5
24	75	71.6	5.61	8.2	9.1	15.3
25	80	71.2	5.55	8.2	9.2	15.4
26	85	70.0	5.43	8.2	9.2	15.5
27	90	68.3	5.28	8.2	9.1	15.4
28	95	67.5	5.19	8.2	9.1	15.5
29	100	67.0	5.13	8.2	9.1	15.6

に示すようにSm₂Co₁₇系磁石粉とSmFeN系磁石粉の混合粉の場合も同様にSm₂Co₁₇系磁石粉の50μm以上500μm以下の粗粉とSmFeN系磁石粉10μm以下の微粉を混合するために最適の混合比の複合粉で充填密度を真密度の82%まで上げることが可能であり、最大エネルギー積で19MGoeが得られた。またSm₂Co₁₇の場合、ここで限定した粒度より下位粒(50μm以下)、または上位粒(500μm以上)の粉体が5%以下は含まれても問題はなく、実際上は篩

い分けしたとしても特に下位粒はこの程度存在するのが普通である。

【表4】

【0012】このように、複合ボンド磁石にした場合は、単独では粒径が小さすぎるかまたは大きすぎるために密度が上がらず特性が十分出ないのに対し、複合ボンド磁石において最適な混合比にした場合、粒度の上位粒、下位粒のそれぞれの特徴が生かされ、密度が向上するとともに単独では出せなかった特性が引き出せる。

【0013】

【実施例1】NdFeB系の50~500 μ mの異方性ボンド磁石粉に、SmFeN系の100 μ m以下の磁石粉の0~100重量%を10重量%までは1%間隔で、また、10重量%以上では5重量%間隔に、Ar雰囲気中のニーダーを用いて均一混合した。この混合粉体に熱硬化性エポキシ樹脂を1~3部混合しコンパウンド化した。これを15Koeの横磁場で10t/cm²のプレス圧で成形し5mm×5mm×3mmの圧粉体とし、不活性雰囲気中150~200℃の温度でキュアし異方性ボンド磁石とした。これらボンド磁石の密度は比重計で、磁石特性はBHトレーサーで測定した。その結果を表1に示す。

【表1】はNdFeBとSmFeNの混合ボンド磁石におけるSmFeNの全体に対する混合量(重量%)と密度、残留磁束密度Br(KG)、保磁力iHc(KOe)、最大エネルギー積(BH)max(MGOe)の関係を示す。なお、それぞれ単独での磁石特性はNdFeBの場合は0%、SmFeNの場合は100%の項で示され、従来の磁石との比較が可能である。これより、1重量%以上の混合で密度が上がるとともに特性が向上し、約30重量%で特性はピークに達し最高で30MGOeの最大エネルギー積が得られた。

【0014】

【実施例2】NdFeBの50~500 μ m異方性ボンド磁石粉に、Sm₂Co₁₇の100 μ m以下の異方性磁石粉0~100重量%を10重量%までは1%間隔で、また、10重量%以上では5重量%間隔に、Ar雰囲気中のニーダーを用いて均一混合した。この混合粉体に熱硬化性エポキシ樹脂を1~3部混合しコンパウンド化した。これを15Koeの横磁場で10t/cm²のプレス圧で成形し5mm×5mm×3mmの圧粉体とし、不活性雰囲気中150~200℃の温度でキュアし異方性ボンド磁石とした。これらボンド磁石の密度は比重計で、磁石特性はBHトレーサーで測定した。その結果を表2に示す。

【表2】はNdFeBとSm₂Co₁₇の混合ボンド磁石におけるSm₂Co₁₇の全体に対する混合量(重量%)と密度、残留磁束密度Br(KG)、保磁力iHc(KOe)、最大エネルギー積(BH)max(MGOe)の値を示す。なお、それぞれ単独での磁石特性はNdFeBの場合は0%、Sm₂Co₁₇の場合は100%の項で示される。これより、1重量%以上の混合で密度が上がるとともに特性が向上し、約30重量%で特性はピークに達し最高で21MGOeの最大エネルギー積が得られた。

【0015】

【実施例3】NdFeBの50~500 μ m異方性ボ

ンド磁石粉に、Sm₂Co₁₇の10 μ m以下、50 μ m以下、100 μ m以下、250 μ m以下、500 μ m以下の異方性磁石粉0~100重量%を10重量%までは1%間隔で、また、10重量%以上では5重量%間隔に、Ar雰囲気中のニーダーを用いて均一混合した。この混合粉体に熱硬化性エポキシ樹脂を1~3部混合しコンパウンド化した。これを15Koeの横磁場で10t/cm²のプレス圧で成形し5mm×5mm×3mmの圧粉体とし、不活性雰囲気中150~200℃の温度でキュアし異方性ボンド磁石とした。これらの、密度および磁石特性を

【実施例2】と同様に測定し、それぞれ最大エネルギー積値が最大になる混合量での各値を

【表3】に示す。これより、Sm₂Co₁₇の250 μ m以下の混合では密度の上昇が見られず、混合の効果はなく、100 μ m以下の粉体の混合において効果がみられることが、

【請求項2】で100 μ m以下に限定した理由である。

【0016】

【実施例4】Sm₂Co₁₇の50~500 μ m異方性ボンド磁石粉に、SmFeNの10 μ m以下の異方性磁石粉0~100重量%を10重量%までは1%間隔で、また、10重量%以上では5重量%間隔に、Ar雰囲気中のニーダーを用いて均一混合した。この混合粉体に熱硬化性エポキシ樹脂を1~3部混合しコンパウンド化した。これを15Koeの横磁場で10t/cm²のプレス圧で成形し5mm×5mm×3mmの圧粉体とし、不活性雰囲気中150~200℃の温度でキュアし異方性ボンド磁石とした。これらボンド磁石の密度は比重計で、磁石特性はBHトレーサーで測定した。その結果を表4に示す。この表はSm₂Co₁₇とSmFeNの混合ボンド磁石におけるSmFeNの全体に対する混合量(重量%)と密度、残留磁束密度Br(KG)、保磁力iHc(KOe)、最大エネルギー積(BH)max(MGOe)の関係を示す。なお、それぞれ単独での磁石特性はSm₂Co₁₇の場合は0%、SmFeNの場合は100%の項で示される。これより、5重量%以上65重量%以下の混合で密度が上がるとともに特性が向上し、約30重量%で特性はピークに達し最高で19MGOeの最大エネルギー積が得られた。

【0017】

【発明の効果】以上述べたように、R-Fe-B系の異方性複合ボンド磁石の発明は、従来の単独でのボンド磁石の特徴を活かした画期的なものであり、通常の圧縮プレスで焼結磁石並みの特性を出す事に成功した。これまでの焼結磁石の置き換えが可能であり、発明の効果は非常に大きい。

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.